

STABILIZATION OF ALUMINUM NITRIDE

Publication number: JP2083285

Publication date: 1990-03-23

Inventor: HONCHI AKIO; OKADA HIDEO; YAMASHITA HISAO

Applicant: HITACHI LTD

Classification:

- International: **C04B35/581; C04B35/58; C04B41/87; C04B35/581;
C04B35/58; C04B41/87; (IPC1-7): C04B35/58;
C04B41/87**

- European:

Application number: JP19880235004 19880921

Priority number(s): JP19880235004 19880921

Report a data error here

Abstract of JP2083285

PURPOSE: To suppress the reaction of AlN with water and to obtain an aluminum nitride suitable as a heat-radiating insulation material, a substrate material, etc., by calcining a sintered AlN in an oxidizing atmosphere, thereby forming an Al₂O₃ layer on the surface. **CONSTITUTION:** The reaction of a sintered AlN with water can be suppressed by heat-treating the sintered AlN in an oxidizing atmosphere (e.g., air) to form an alpha-alumina layer on the surface. The heat-treatment temperature is preferably ≥ 900 deg.C, especially ≥ 1100 deg.C. The reactivity of AlN with water at room temperature after 50hr can be decreased to ≤ 20 mug/cm².

Data supplied from the **esp@cenet** database - Worldwide

⑫ 公開特許公報(A) 平2-83285

⑤Int.Cl.⁵C 04 B 41/87
35/58

識別記号

1 0 4 Q

庁内整理番号

M 7412-4G
Q 7412-4G

④公開 平成2年(1990)3月23日

審査請求 未請求 請求項の数 8 (全4頁)

⑭発明の名称 窒化アルミニウムの安定化法

⑰特 願 昭63-235004

⑱出 願 昭63(1988)9月21日

⑰発明者 本地 章 夫 茨城県日立市久慈町4026番地 株式会社日立製作所日立研究所内
 ⑰発明者 岡田 秀 夫 茨城県日立市久慈町4026番地 株式会社日立製作所日立研究所内
 ⑰発明者 山下 寿 生 茨城県日立市久慈町4026番地 株式会社日立製作所日立研究所内
 ⑰出願人 株式会社日立製作所 東京都千代田区神田駿河台4丁目6番地
 ⑰代理人 弁理士 小川 勝男 外2名

明 細 書

1. 発明の名称

窒化アルミニウムの安定化法

2. 特許請求の範囲

1. 窒化アルミニウム粉末を焼結した窒化アルミニウム焼結体と水との反応を抑制する方法において、

前記窒化アルミニウム焼結体を酸化雰囲気中で熱処理して表面に酸化アルミニウム層を形成することを特徴とする窒化アルミニウムの安定化法。

2. 特許請求の範囲第1項において、

前記熱処理温度が900℃以上であることを特徴とする窒化アルミニウムの安定化法。

3. 特許請求の範囲第1項において、

前記酸化雰囲気が空気であることを特徴とする窒化アルミニウムの安定化法。

4. 窒化アルミニウム粉末を焼結した窒化アルミニウム焼結体と水との反応を抑制する方法において、

前記窒化アルミニウム焼結体の表面にアルミナ層を設けることを特徴とする窒化アルミニウムの安定化法。

5. 特許請求の範囲第4項において、

前記アルミナ層が α -アルミナであることを特徴とする窒化アルミニウムの安定化法。

6. 特許請求の範囲第4項において、

前記アルミナ層をコーティングによつて設けることを特徴とする窒化アルミニウムの安定化法。

7. 窒化アルミニウム粉末を焼結した窒化アルミニウム焼結体と水との反応を抑制する方法において、

前記焼結体を加工した後に、酸化雰囲気中で熱処理することを特徴とする窒化アルミニウムの安定化法。

8. 窒化アルミニウム粉末を焼結した窒化アルミニウム焼結体と水との反応を抑制する方法において、

室温で水との反応量が五十時間後に、20

$\mu\text{g}/\text{cm}^2$ (幾何学的面積) 以下であることを特徴とする窒化アルミニウムの安定化法。

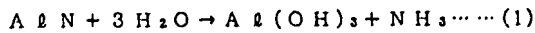
3. 発明の詳細な説明

〔産業上の利用分野〕

本発明はエレクトロニクスデバイスに係り、特に、放熱絶縁材料、基板材料として好適な窒化アルミニウムに関する。

〔従来の技術〕

窒化アルミニウムは熱伝導率が大きく、かつ、優れた電気絶縁性をもつため、エレクトロニクスデバイスの放熱絶縁材料、基板材料として注目されている。たとえば、特開昭62-182182号公報参照しかし、このような優れた特性をもっているにもかかわらず、その不安定性から使用範囲が限定されている。すなわち、窒化アルミニウムは水と次式のように反応し、



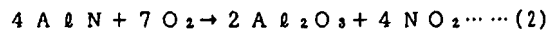
表面に水酸化アルミニウム(アルミナ水和物)が生成し、この反応は窒化アルミニウムの表面で終結することなく、内部にまで進行する。この反応は

ならないと考えられる。

〔課題を解決するための手段〕

上記目的は、窒化アルミニウムを酸化雰囲気中で熱処理することにより達成される。

安定層を窒化アルミニウムの表面に薄く、かつ、強固に付けるためには、窒化アルミニウム自体の表面を改質することが最上の方法であると考えられる。一方、窒化アルミニウムは空气中で加熱すると酸化され、アルミナが生成することが明らかとなった。



そこで、窒化アルミニウムを空气中で900～1200℃の温度で熱処理して、表面にアルミナ層を形成したところ、水とほとんど反応しないことがわかった。

〔作用〕

窒化アルミニウムを大気中で酸化すると、表面にアルミナ(α -アルミナ)層が形成される。このアルミナ層は窒化アルミニウム中に含有するアルミニウムの酸化によつて生成したものであるの

で、雰囲気中に含まれている水(すなわち水蒸気)によつても進行するので、窒化アルミニウムの使用範囲が限られている。

〔発明が解決しようとする課題〕

本発明の目的は、窒化アルミニウムの表面に安定層を設けることによつて、水との反応を抑制することにある。

窒化アルミニウムは水との接触によつて反応し、表面に水酸化アルミニウム(アルミナ水和物)が生成する。生成した水酸化アルミニウムは剥離し易く、かつ、電気絶縁性、熱伝導率を低下させる。しかも、この反応は表面で終結することなく、内部にまで及ぶ。おそらく、生成した水酸化アルミニウム層が多孔質であるが、または、水酸化アルミニウム中の OH^- 、 H_2O が窒化アルミニウムと反応するためと考えられる。

そこで、窒化アルミニウムの表面に安定層を設け、窒化アルミニウムと水との接触を抑制することを考えた。その場合、電気絶縁性、熱伝導率は低下するが、安定層が非常に薄い場合には問題と

で、密着力が強く、かつ、緻密な層が形成されていると考えられる。これにより、水と窒化アルミニウムとの接触が抑制され、水との反応が抑制されると思われる。また、生成したアルミナ層は化学的に安定であり、かつ、 OH^- 、 H_2O を含まないので、アルミナ層が窒化アルミニウムと反応することもない。これらの理由により、水との反応性が抑制されたと考えられる。

〔実施例〕

以下、本発明の実施例について説明する。

〈実施例1〉

粒径3～5 μm の窒化アルミニウム粉末に、焼結助剤としてイットリアを添加して焼結した窒化アルミニウム焼結体(40mm×10mm×1mm)を、大気中900～1200℃で三十分間熱処理した。これを、それぞれ200mlの蒸留水に浸漬して室温で放置し、生成するアンモニア量を化学分析により定量した。生成アンモニア量から、(1)式により反応が進行すると仮定して、窒化アルミニウムの反応量を求めた。その結果を第1図に示

す。図の縦軸は窒化アルミニウムの単位外表面積（幾何学的表面積）当りの反応量である。図中のAは未処理の場合、Bは900℃、Cは1000℃、Dは1100℃、及び、Eは1200℃で熱処理した場合の反応量の経時変化を示す。熱処理することにより、反応量は減少しており、また、勾配（反応量の経時的な増加率）も小さくなり、熱処理が窒化アルミニウムの安定化に有効であることがわかる。第2図は、熱処理温度に対する50時間後の反応量を示す図である。熱処理温度が上昇するにつれて反応量が減少していることがわかる。特に、1100℃以上で反応量はほぼ一定となることがわかる。すなわち、熱処理温度は1100℃以上が好ましい。

このように、熱処理によつて水との反応を抑制できることがわかつたので、次にその原因について調べることにした。熱処理前後の窒化アルミニウムを、銅をターゲットとするX線回折により調べた。第3図はそのX線回折パターンを示す図である。図中のAは未処理の場合、Bは1100℃、

900℃から窒化アルミニウムがα-アルミナに変化し始めることがわかる。この結果は、900℃で30分間窒化アルミニウム焼結体を大気中で熱処理した場合に、水との反応性が抑制されたことと対応する。

〈実施例2〉

実施例1で用いた窒化アルミニウム焼結体を硝酸アルミニウム水溶液に浸漬してコーティングした後に、900℃で30分間加熱し、水との反応性を実施例1の方法で調べた。その結果、50時間後の反応量は $8\mu\text{g}/\text{cm}^2$ であつた。すなわち、単に900℃で加熱した場合よりも反応量が小さい。硝酸アルミニウム水溶液に浸漬してコーティングすることにより、アルミナ層が厚くなったためと考えられる。このようにすると、安定化のための熱処理温度を下げることができる。

〔発明の効果〕

本発明によれば、窒化アルミニウム表面にα-アルミナ層を形成することができ、水との反応を抑制して、安定化が可能である。

Cは1200℃で熱処理した場合のX線回折パターンである。○印で示したピークはα-アルミナに相当しており、1100℃、1200℃で熱処理するとα-アルミナが生じている。また、1100℃より1200℃の場合の方がα-アルミナのピーク強度が大きく、α-アルミナの生成量が多いと考えられる。

この結果から、熱処理することによつて、窒化アルミニウム表面にα-アルミナの層が形成され、この層が窒化アルミニウムと水との接触を妨げるために、水との反応量が低減し、安定化されることが考えられる。

また、窒化アルミニウムの表面にα-アルミナの層が形成される温度を明らかにするために、窒化アルミニウム粉末の示差熱-熱重量分析を行った。その結果を第4図に示す。空气中、昇温速度 $10^\circ/\text{分}$ で測定した。約900℃から重量増加がみられ、また、発熱反応が生じ始めることがわかる。発熱は約1200℃にピークとなり、約1400℃で反応が終結している。すなわち、約

4. 図面の簡単な説明

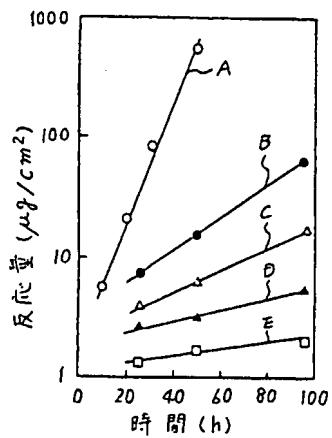
第1図は本発明の一実施例における窒化アルミニウムと水との反応による窒化アルミニウムの反応量の経時変化を示す図。第2図は熱処理温度と50時間後の窒化アルミニウムの反応量の間の関係を示す図。第3図は熱処理前後の窒化アルミニウムのX線回折パターンを示す図。第4図は窒化アルミニウム粉末の示差熱-熱重量分析の結果を示す図である。

A…未処理。

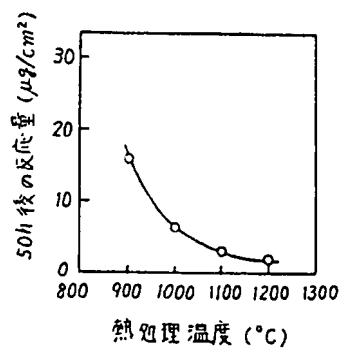
代理人 弁理士 小川勝男



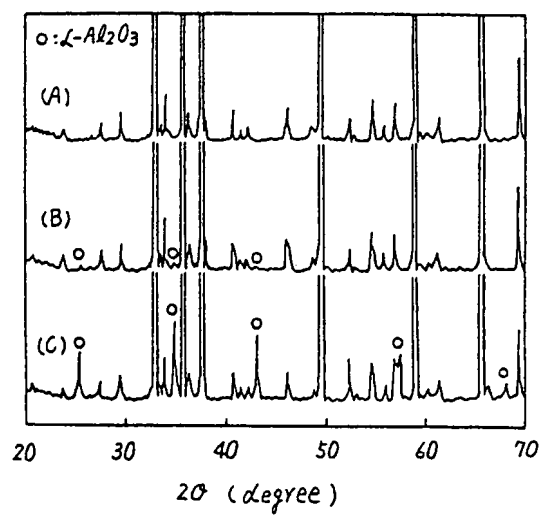
第 1 図



第 2 図



第 3 図



第 4 図

